

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES  
PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
7. Dezember 2000 (07.12.2000)

PCT

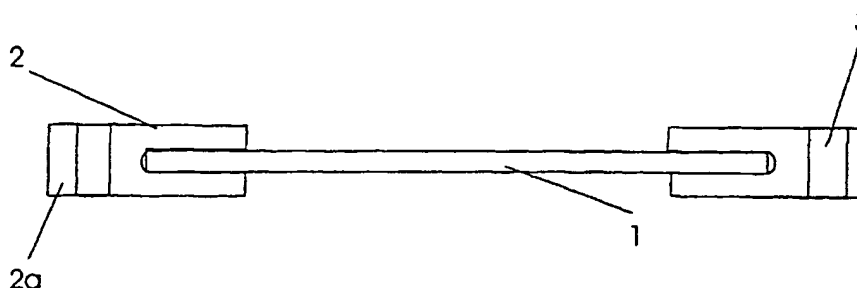
(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
WO 00/74161 A1

- (51) Internationale Patentklassifikation<sup>7</sup>: H01M 8/02, (72) Erfinder; und  
C25B 9/00 (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): BRONOLD, Matthias  
[DE/DE]; Marienstrasse 7, D-12207 Berlin (DE). MAI,  
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/DE00/01743 Frank [DE/DE]; Dorfstrasse 33B, D-15913 Ressen-Zaue  
(DE).  
(22) Internationales Anmeldedatum: 25. Mai 2000 (25.05.2000) (74) Anwalt: SPECHT, Volker; Potsdamer Chaussee 48,  
D-14129 Berlin (DE).  
(25) Einreichungssprache: Deutsch  
(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch (81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AL, AM, AT, AU,  
AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE,  
DK, DM, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID,  
IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT,  
LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, NO, NZ, PL,  
PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ,  
UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.  
(30) Angaben zur Priorität: 199 26 027.3 28. Mai 1999 (28.05.1999) DE  
(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von  
US): HELIOCENTRIS ENERGIESYSTEME GMBH  
[DE/DE]; Rudower Chaussee 29, D-12489 Berlin (DE).

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: MEMBRANE ELECTRODE UNIT COMPRISING AN INTEGRATED SEALING EDGE

(54) Bezeichnung: MEMBRAN-ELEKTRODEN-EINHEIT MIT INTEGRIERTEM DICHRAND



(57) Abstract: The invention relates to a membrane electrode unit (1) which is provided for a fuel cell or the like and which comprises a polymer electrolyte membrane that is coated on both sides with electrodes. The sealing edge (2) which is configured on the outer periphery is comprised of a hot-melt-type adhesive whose hydrocarbon skeleton carries, at regular intervals, ionic or strong polar groups which enter into a surface interaction with the ionic groups of the membrane material and thus provide for a good adhesive effect of the hot-melt-type adhesive to the polymer electrolyte membrane. A portion of the sealing edge that protrudes over the outer edge of the membrane electrode unit forms a one-piece homogeneous edge area (2a) which is provided with openings for installation and for guiding media, which further improves the sealing effect of the membrane electrode unit, and which contributes to the stability thereof.

(57) Zusammenfassung: Bei einer für eine Brennstoffzelle oder dgl. vorgesehenen Membran-Elektroden-Einheit (1), die eine beidseitig mit Elektroden beschichtete Polymerelektrolytmembran umfasst, besteht der am Aussenumfang ausgebildete Dichtrand (2) aus einem Schmelzkleber, dessen Kohlenwasserstoffgerüst in regelmässigen Abständen ionische oder stark polare Gruppen trägt, die mit den ionischen Gruppen des Membranmaterials in eine Oberflächenwechselwirkung treten und somit für eine gute Haftwirkung des Schmelzklebers an der Polymerelektrolytmembran sorgen. Ein über den Aussenrand der Membran-Elektroden-Einheit hinausragender Teil des Dichtrandes bildet einen einstrückigen homogenen Randbereich (2a), der mit Durchbrüchen für die Montage und Medienführung versehen ist und die Dichtwirkung der Membran-Elektroden-Einheit weiter verbessert sowie zu deren Stabilität beiträgt.

WO 00/74161 A1



(84) **Bestimmungsstaaten (regional):** ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

**Veröffentlicht:**

— Mit internationalem Recherchenbericht.

— Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche geltenden Frist; Veröffentlichung wird wiederholt, falls Änderungen eintreffen.

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

## MEMBRAN-ELEKTRODEN-EINHEIT MIT INTEGRIERTEM DICHTRAND

## Beschreibung

5 Die Erfindung betrifft eine Membran-Elektroden-Einheit mit integriertem Dichtrand für elektrochemische Zellen, die aus einer Polymerelektrolytmembran und diese beidseitig bedeckenden Elektroden sowie einem am Umfangsrand aufgetragenen thermoplastischen Dichtungsmittel besteht.

10 Aus der DE 197 03 214 ist bereits eine Membran-Elektroden-Einheit der eingangs erwähnten Art bekannt, bei der der Dichtrand die Elektroden in dem betreffenden Randbereich durchdringt und an der Polymerelektrolytmembran haftet. Als Dichtmittel wird ein thermoplastischer oder aushärtbarer Kunststoff verwendet, der in der flüs-  
15 sigen Phase durch Kapillarwirkung über die Poren in den Elektroden zur Polymerelektrolytmembran gelangen und an dieser haften soll, um so eine sichere Abdichtung zu bewirken. Es hat sich jedoch herausgestellt, daß die be-  
20 kannten ionenleitenden Polymerelektrolytmembranen, die an das Polymergerüst angehängte ionische Gruppen aufweisen, eine sehr geringe Oberflächenenergie haben. Sie lassen sich daher nur schwer an andere Materialien binden, so  
25 daß die Haft- und Dichtwirkung eingeschränkt ist.

Der Erfindung liegt daher die Aufgabe zugrunde, den Dichtrand für eine Membran-Elektroden-Einheit so auszubilden, daß eine hohe Dichtwirkung an der Polymerelektro-  
30 lytmembran und an den Durchbrüchen für die Medienführung erreicht wird und gleichzeitig die Handhabung der Membran-Elektroden-Einheit bei der Montage erleichtert wird.

Erfindungsgemäß wird die Aufgabe bei einer Membran-Elektroden-Einheit gemäß dem Oberbegriff des Anspruchs 1  
35 in der Weise gelöst, daß der Dichtrand aus einer beidsei-

5       tig aufgetragenen Schmelzkleberschicht besteht, die sich  
über die Außenkante der Membran-Elektroden-Einheit hinaus  
erstreckt und dort einen einstückigen überstehenden Teil-  
bereich bildet, wobei der Schmelzkleber ionische oder  
stark polare Gruppen zur Erzeugung einer Oberflächenwech-  
selwirkung mit den ionischen Gruppen der Polymerelektro-  
lytmembran und damit einer guten Haftwirkung enthält.

10       Es wird somit eine Membran-Elektroden-Einheit mit einem  
verhältnismäßig stabilen, an dem Membranmaterial gut haf-  
tenden Dichtrand zur Verfügung gestellt, der aufgrund  
seiner versteifenden Wirkung auch eine einfache Handha-  
bung bei der Montage gewährleistet und zudem eine einfa-  
che und gut abgedichtete Ausbildung der Durchbrüche für  
15       die Montage und Medienführung bei einem Brennstoffzellen-  
stapel ermöglicht. Wegen des nur am äußeren Randbereich  
der Membran-Elektroden-Einheit angebrachten Dichtrandes  
ist der Bedarf an Membran- und Elektrodenmaterial relativ  
gering. Die gute Haftung und Abdichtung wird zum einen  
20       dadurch erreicht, daß der nach außen überstehenden Teil-  
bereich eine einstückige Einheit bildet und zum anderen  
die an dem Kohlenwasserstoffgerüst des Schmelzklebers in  
im wesentlichen regelmäßigen Abständen vorhandenen pola-  
ren Gruppen eine starke polare Wechselwirkung mit dem  
25       Säuregruppen enthaltenden Membranmaterial und damit einen  
starken Klebeeffekt erzeugen.

30       Weitere Merkmale und zweckmäßige Weiterbildungen bzw.  
Vorteile der Erfindung ergeben sich aus den Unteransprü-  
chen bzw. der nachfolgenden Beschreibung einer lediglich  
beispielhaft wiedergegebenen Ausführungsform der Erfin-  
dung.

35       Das Ausführungsbeispiel wird anhand der Zeichnung näher  
erläutert. Es zeigen:

- Fig. 1 eine Schnittansicht einer mit einem erfindungsgemäß ausgebildeten Dichtrand versehenen Membran-Elektroden-Einheit;
- 5 Fig. 2 eine Draufsicht der Membran-Elektroden-Einheit nach Fig. 1; und
- Fig. 3 eine Schnittansicht einer mit beidseitig angeordneten Gasverteilern und Stromableitern komplettierten Membran-Elektroden-Einheit in einer Brennstoffzelle.
- 10 Brennstoffzelle.
- Gemäß den Figuren 1 bis 3 ist die Membran-Elektroden-Einheit 1 am Umfang mit einem speziellen Schmelzkleber zur Ausbildung eines Montagerandes oder Dichtrandes 2 mit
- 15 abdichtender Wirkung in einer Brennstoffzelle oder einem Brennstoffzellenstapel versehen. Der Dichtrand deckt den Randbereich der Membran-Elektroden-Einheit 1 beidseitig ab und ist über deren umlaufende Kante hinaus zu einem einstückigen Randbereich 2a verlängert, in dem sich
- 20 Durchbrüche 3 zur Medienführung und/oder für die Montage bei einem Brennstoffzellenstapel befinden. Die Ausbildung des Dichtrandes erfolgt unter Wärme- und Druckeinwirkung auf das auf den Rand der Membran-Elektroden-Einheit 1
- 25 aufgelegte Schmelzklebermaterial, das sich während der schmelzflüssigen Phase in dem überstehenden Bereich miteinander und ansonsten mit der Membran-Elektroden-Einheit 1 fest verbindet.
- 30 Damit steht eine Membran-Elektroden-Einheit zur Verfügung, die einen verhältnismäßig steifen Rand mit abdichtender Wirkung aufweist. Die Membran-Elektroden-Einheit 1 kann dadurch einfach gehandhabt und montiert werden. Der Verbrauch an Membran- und Elektrodenmaterial ist gering,
- 35 da der Schmelzkleber nur den äußersten Rand der Membran-Elektroden-Einheit abdeckt und die erforderlichlich Handha-

bungs- und Montagebreite dadurch erreicht wird, daß sich der Schmelzkleber über die Außenkante des Membran- und Elektrodenmaterials hinaus erstreckt.

- 5 Eine wichtige Voraussetzung für die Verbindung des Dichtrandes 2 mit der Membran-Elektroden-Einheit 1 ist die Bereitstellung eines geeigneten Schmelzklebers, da dieser normalerweise aufgrund der geringen Oberflächenenergie der Polymerelektrolytmembran schlecht haftet. Es  
10 wird daher ein Schmelzkleber mit ionischen oder stark polaren Gruppen eingesetzt, die in Wechselwirkung mit den ionischen Gruppen des Membranmaterials eine gute Haftung gewährleisten. In der vorliegenden Ausführungsform wird als Schmelzklebstoff ein Copolymer aus Ethylen und  
15 Methacrylsäure verwendet, das sich aufgrund der Carbonsäuregruppen hervorragend mit der Polymerelektrolytmembran verbindet.

- 20 In Fig. 3 ist eine komplette Brennstoffzelleneinheit unter Verwendung einer mit dem Dichtrand 2 versehenen Membran-Elektroden-Einheit 1 dargestellt. Auf beiden Seiten der Membran-Elektroden-Einheit 1 sind Gasverteiler 4 aus porösem Kohlenstoff sowie Stromableiter 5 (oder bipolare Platten) angeordnet. In dem verbleibenden Zwischenraum  
25 zwischen den Stromableiter 5 und dem Dichtrand 2 befindet sich hier jeweils eine zusätzliche Dichtung 6.

## Patentansprüche

1. Membran-Elektroden-Einheit mit integriertem Dichtrand  
5 für elektrochemische Zellen, die aus einer Polymer-  
elektrolytmembran und diese beidseitig bedeckenden  
Elektroden sowie einem am Umfangsrand aufgetragenen  
thermoplastischen Dichtrand besteht, dadurch gekenn-  
zeichnet, daß der Dichtrand (2) aus einer beidseitig  
10 aufgebrachten Schmelzkleberschicht besteht, die sich  
über die Außenkante der Membran-Elektroden-Einheit  
(1) hinaus erstreckt und dort einen einstückigen  
überstehenden Teilbereich (2a) bildet, wobei der  
Schmelzkleber ionische oder stark polare Gruppen zur  
15 Erzeugung einer Oberflächenwechselwirkung mit den io-  
nischen Gruppen der Polymerelektrolytmembran und da-  
mit einer hohen Haftwirkung enthält.
2. Membran-Elektroden-Einheit nach Anspruch 1, dadurch  
20 gekennzeichnet, daß in dem überstehenden Teilbereich  
(2a) des Dichtrandes (2) Durchbrüche (3) zur Montage  
und/oder zur Medienführung in einem Brennstoffzellen-  
stapel vorgesehen sind.
- 25 3. Membran-Elektroden-Einheit nach Anspruch 1 und 2, da-  
durch gekennzeichnet, daß zur Bildung einer komplet-  
ten Zelle der aktive Bereich der Membran-Elektroden-  
Einheit (1) beidseitig mit einem Gasverteiler (4) ab-  
gedeckt ist und über die gesamte Einheit beidseitig  
30 jeweils eine bipolare Platte oder ein Stromableiter  
(5) gelegt ist, wobei die bipolare Platte bzw. der  
Stromableiter mindestens auf einer Seite unmittelbar  
mit dem Dichtrand (2) verklebt ist.
- 35 4. Membran-Elektroden-Einheit nach Anspruch 3, dadurch  
gekennzeichnet, daß zwischen dem Dichtrand (2) und

dem Stromableiter (5) eine zusätzliche Dichtung (6) vorgesehen ist.

5. Membran-Elektroden-Einheit nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der Schmelzkleber ein aus einem Monomer und Carbonsäure oder deren Salzen oder deren polaren Derivaten gebildetes Copolymer ist.
6. Membran-Elektroden-Einheit nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß der Schmelzkleber für den Dichtrand (2) ein Copolymer aus Ethylen und Methacrylsäure ist.
7. Membran-Elektroden-Einheit nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß der Schmelzkleber für den Dichtrand (2) ein Copolymer aus Ethylen und Vinylacetat ist.
8. Membran-Elektroden-Einheit nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß der Schmelzkleber in im wesentlichen regelmäßigen Abständen in einem Polymergerüst Carbonsäureesterbindungen enthält.
9. Membran-Elektroden-Einheit nach Anspruch 6 bis 8, dadurch gekennzeichnet, daß der Schmelzkleber mit weiteren Komponenten wie organischen Säuren oder anderen polaren Säurederivaten, zum Beispiel Säureanhydride oder Ester, copolymerisiert ist.



Fig. 1

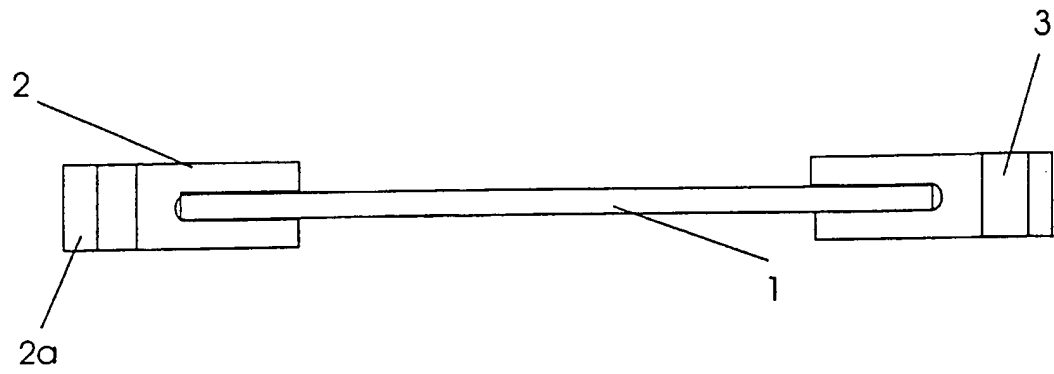


Fig. 2

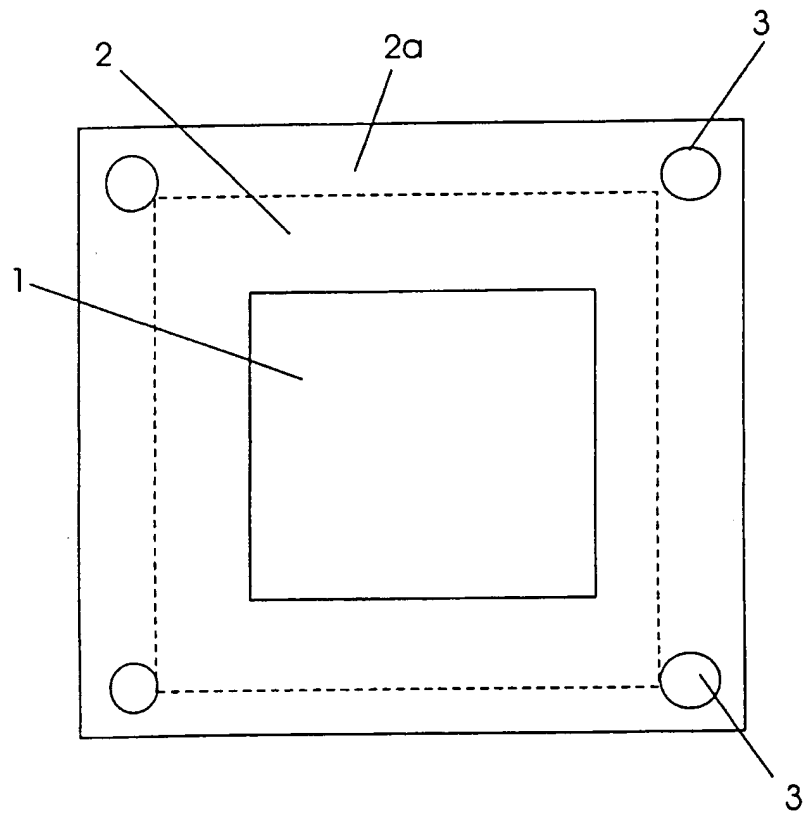
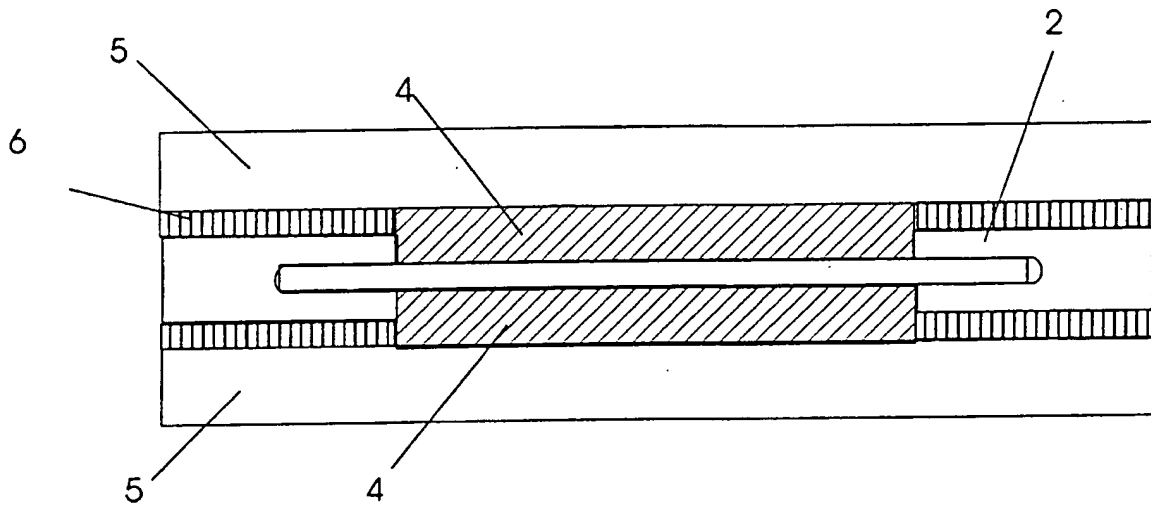


Fig. 3



# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internati Application No  
PCT/DE 00/01743

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b> IPC 7 H01M8/02 C25B9/00		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b> Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) IPC 7 H01M C25B		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used) PAJ, EPO-Internal		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1996, no. 10, 31 October 1996 (1996-10-31) & JP 08 148169 A (TOKYO GAS CO LTD), 7 June 1996 (1996-06-07) abstract	1
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1998, no. 03, 27 February 1998 (1998-02-27) & JP 09 289028 A (TANAKA KIKINZOKU KOGYO KK), 4 November 1997 (1997-11-04) abstract	1
A	GB 2 323 700 A (BALLARD POWER SYSTEMS) 30 September 1998 (1998-09-30) claim 7; figure 5	1
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of box C. <input checked="" type="checkbox"/> Patent family members are listed in annex.		
* Special categories of cited documents : "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 9 November 2000		Date of mailing of the international search report 21/11/2000
Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Authorized officer D'hondt, J

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Internati Application No

PCT/DE 00/01743

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
JP 08148169 A	07-06-1996	NONE	
JP 09289028 A	04-11-1997	NONE	
GB 2323700 A	30-09-1998	DE 19713250 A	15-10-1998
		CA 2233440 A	29-09-1998
		GB 2348047 A	20-09-2000

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 00/01743

## A. KLASSTIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 7 H01M8/02 C25B9/00

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

## B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 H01M C25B

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

PAJ, EP0-Internal

## C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1996, no. 10, 31. Oktober 1996 (1996-10-31) & JP 08 148169 A (TOKYO GAS CO LTD), 7. Juni 1996 (1996-06-07) Zusammenfassung	1
A	PATENT ABSTRACTS OF JAPAN vol. 1998, no. 03, 27. Februar 1998 (1998-02-27) & JP 09 289028 A (TANAKA KIKINZOKU KOGYO KK), 4. November 1997 (1997-11-04) Zusammenfassung	1
A	GB 2 323 700 A (BALLARD POWER SYSTEMS) 30. September 1998 (1998-09-30) Anspruch 7; Abbildung 5	1

☐ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

\* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann nahelegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

9. November 2000

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

21/11/2000

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde  
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

D'hondt, J

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/DE 00/01743

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
JP 08148169 A	07-06-1996	KEINE	
JP 09289028 A	04-11-1997	KEINE	
GB 2323700 A	30-09-1998	DE 19713250 A	15-10-1998
		CA 2233440 A	29-09-1998
		GB 2348047 A	20-09-2000